

17.11.03

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

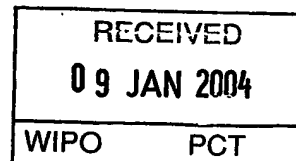
別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日            2 0 0 2 年 1 1 月 1 8 日  
Date of Application:

出 願 番 号            特 願 2 0 0 2 - 3 3 3 9 8 9  
Application Number:  
[ST. 10/C]:            [ J P 2 0 0 2 - 3 3 3 9 8 9 ]

出      願      人            シービーエムエムアジア株式会社  
Applicant(s):

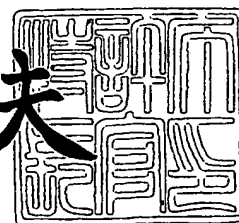


PRIORITY DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

2003年12月18日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今井康夫



【書類名】 特許願

【整理番号】 CBM0003

【提出日】 平成14年11月18日

【あて先】 特許庁長官 太田 信一郎 殿

【発明者】

【住所又は居所】 東京都港区赤坂4丁目1番地4号 赤坂中西ビル別館1階 シービーエムエムアジア株式会社内

【氏名】 今葦倍 正名

【特許出願人】

【識別番号】 502169054

【氏名又は名称】 シービーエムエムアジア株式会社

【代理人】

【識別番号】 100107892

【弁理士】

【氏名又は名称】 内藤 俊太

【選任した代理人】

【識別番号】 100105441

【弁理士】

【氏名又は名称】 田中 久喬

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 089005

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 電解コンデンサ用Nb-A1合金粉末及びその製造方法、並びに電解コンデンサ

【特許請求の範囲】

【請求項1】 表面に誘電体層を形成することで電解コンデンサの陽極体として用いられるNb-A1合金粉末であって、

NbAl<sub>3</sub>、Nb<sub>2</sub>Al、Nb<sub>3</sub>Al、又はNbを主体とする微細デンドライト組織と、該デンドライト組織を取り囲む、NbAl<sub>3</sub>、Nb<sub>2</sub>Al、Nb<sub>3</sub>Al、又はNbから選ばれる2種よりなる共晶状組織からなるマトリクスとを有することを特徴とする電解コンデンサ用Nb-A1合金粉末。

【請求項2】 前記Nb-A1合金のアルミニウム含有量が、27質量%以上46質量%未満であり、

NbAl<sub>3</sub>を主体とする前記デンドライト組織と、該デンドライト組織の周囲を取り囲むNbAl<sub>3</sub>とNb<sub>2</sub>Alとの共晶状マトリクスとを有することを特徴とする請求項1に記載の電解コンデンサ用Nb-A1合金粉末。

【請求項3】 前記Nb-A1合金のアルミニウム含有量が、14質量%以上27質量%未満であり、

Nb<sub>2</sub>Alを主体とする前記デンドライト組織と、該デンドライト組織の周囲を取り囲むNbAl<sub>3</sub>とNb<sub>2</sub>Alとの共晶状マトリクスとを有することを特徴とする請求項1に記載の電解コンデンサ用Nb-A1合金粉末。

【請求項4】 前記Nb-A1合金のアルミニウム含有量が、10質量%以上14質量%未満であり、

Nb<sub>3</sub>Alを主体とする前記デンドライト組織と、該デンドライト組織の周囲を取り囲むNb<sub>3</sub>AlとNb<sub>2</sub>Alの共晶状組織からなるマトリクスとを有することを特徴とする請求項1に記載の電解コンデンサ用Nb-A1合金粉末。

【請求項5】 前記Nb-A1合金のアルミニウム含有量が、10質量%以下であり、

Nbを主体とする前記デンドライト組織と、該デンドライト組織の周囲を取り囲むNb<sub>3</sub>AlとNbとの共晶状マトリクス、あるいはNb<sub>3</sub>Alを主体とするマ

トリックスことを特徴とする請求項1に記載の電解コンデンサ用Nb-A1合金粉末。

【請求項6】 前記Nb-A1合金にタンタル、チタン、ハフニウム、ジルコニウム、モリブデン、バリウム、ストロンチウム、ポロンから選ばれる1種以上の元素が添加されたことを特徴とする請求項1ないし5のいずれか1項に記載の電解コンデンサ用Nb-A1合金粉末。

【請求項7】 前記添加元素の含有量が、3質量%以下であることを特徴とする請求項6に記載の電解コンデンサ用Nb-A1合金粉末。

【請求項8】 前記Nb-A1合金に不純物として含まれる鉄の含有量が、100ppm以下であることを特徴とする請求項1ないし5のいずれか1項に記載の電解コンデンサ用Nb-A1合金粉末。

【請求項9】 前記微細デンドライト組織の太さが、3 $\mu$ m以下であることを特徴とする請求項1ないし8のいずれか1項に記載の電解コンデンサ用Nb-A1合金粉末。

【請求項10】 請求項1ないし10に記載のNb-A1合金粉末を焼結した陽極体を備えたことを特徴とする電解コンデンサ。

#### 【発明の詳細な説明】

#### 【0001】

#### 【発明の属する技術分野】

本発明は、電解コンデンサ用Nb-A1合金粉末及びこれを用いた電解コンデンサに関するものである。

#### 【0002】

#### 【従来の技術】

近年、電子機器等に搭載されるコンデンサにおいては、小型で大容量のものが求められており、この種の電解コンデンサとしては、その陽極体にタンタル粉末の焼結体を用いたものが比較的小型で容量が大きく、コンデンサ性能にも優れる比較的高いニオブを電解コンデンサの陽極体に適用する試みが盛んに行われている（特許文献1等）。また、ニオブを含む陽極体の構成材料として、アルミニウムとニオブ（あるいはチタン、タンタル、ジルコニウム等の弁金属）との合金を

用いることが、特許文献2に提案されている。しかしながら、上記の文献に記載の構成を備えた陽極体を用いた電解コンデンサでは、ニオブ酸化物からなる誘電体層が不安定であり、漏れ電流特性がタンタルコンデンサに比して悪化し易いという問題点があり、実用化する上での障害となっていた。

**【0003】****【特許文献1】**

特開昭55-157226号公報

**【特許文献2】**

特開平1-124212号公報

**【0004】****【発明が解決しようとする課題】**

本発明は、上記従来技術の問題点に鑑みて成されたものであって、誘電体層が安定であり、コンデンサ容量が大きく、耐圧の高い電解コンデンサを構成することができる電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末を提供することを目的としている。

**【0005】**

また本発明は、上記電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末を用いた電解コンデンサを提供することを目的としている。

**【0006】****【課題を解決するための手段】**

上記課題を解決するために、本発明は以下の構成を採用した。

**【0007】**

本発明の電解コンデンサ用Nb-Al合金粉末は、表面に誘電体層を形成することで電解コンデンサの陽極体として用いられるNb-Al合金粉末であって、NbAl<sub>3</sub>、Nb<sub>2</sub>Al、Nb<sub>3</sub>Al、又はNbを主体とする微細デンドライト組織と、該デンドライト組織を取り囲む、NbAl<sub>3</sub>、Nb<sub>2</sub>Al、Nb<sub>3</sub>Al、又はNbから選ばれる2種よりなる共晶状組織からなるマトリクスとを有することを特徴とする。

**【0008】**

このような構成とすることに加えて微細な粉末とすることで、本発明のNb-A1合金粉末は、電解コンデンサの陽極体として用いる金属焼結体を作製するためのタンタル等の1次粉よりもより高い耐圧と高い容量のコンデンサ材料可能である。

#### 【0009】

本発明の電解コンデンサ用Nb-A1合金粉末は、前記Nb-A1合金のアルミニウム含有量が、27質量%以上46質量%未満であり、NbAl<sub>3</sub>を主体とする前記デンドライト組織と、該デンドライト組織の周囲を取り囲むNbAl<sub>3</sub>とNb<sub>2</sub>Alとの共晶状マトリクスとを有する構成とすることができる。

#### 【0010】

本発明の電解コンデンサ用Nb-A1合金粉末は、前記Nb-A1合金のアルミニウム含有量が、14質量%以上27質量%未満であり、Nb<sub>2</sub>Alを主体とする前記デンドライト組織と、該デンドライト組織の周囲を取り囲むNbAl<sub>3</sub>とNb<sub>2</sub>Alとの共晶状マトリクスとを有する構成とすることができる。

#### 【0011】

本発明の電解コンデンサ用Nb-A1合金粉末は、前記Nb-A1合金のアルミニウム含有量が、10質量%以上14質量%未満であり、Nb<sub>3</sub>Alを主体とする前記デンドライト組織と、該デンドライト組織の周囲を取り囲むNb<sub>3</sub>AlとNb<sub>2</sub>Alの共晶状組織からなるマトリクスとを有する構成とすることができる。

#### 【0012】

本発明の電解コンデンサ用Nb-A1合金粉末は、前記Nb-A1合金のアルミニウム含有量が、10質量%未満であり、Nbを主体とする前記デンドライト組織と、該デンドライト組織の周囲を取り囲むNb<sub>3</sub>AlとNbとの共晶状マトリクスとを有する構成とすることができる。

#### 【0013】

次に、本発明の電解コンデンサ用Nb-A1合金粉末は、前記添加元素の含有量が、3質量%以下であることが好ましい。3質量%を越える添加量とするとその陽極酸化物被膜の誘電体特性が不安定となり上記効果を得られない。

## 【0014】

次に、本発明の電解以下である構成とすることが好ましい。

## 【0015】

上記の不純物含有量が100ppmを越えると、電解コンデンサの陽極体を構成した際に表面に形成される誘電体層の耐圧が低下するため好ましくない。

## 【0016】

次に、本発明の電解コンデンサ用Nb-A1合金粉末は、前記微細デンドライト組織の樹枝間隔が3 $\mu$ m以下である構成とすることが好ましい。

## 【0017】

このような構成とすることで、粉末の表面積を拡大し、大容量の電解コンデンサを作製することができる。

## 【0018】

次に、本発明の電解コンデンサは、先に記載の本発明の電解コンデンサ用Nb-A1合金粉末を焼結した陽極体を備えたことを特徴としている。このような構成とすることで、小型大容量の電解コンデンサを提供することができる。

## 【0019】

## 【発明の実施の形態】

本発明に係る電解コンデンサ用Nb-A1合金粉末は、Nb又はNb-A1金属間化合物を主体とし、樹枝状に延在する微細デンドライト組織と、このデンドライト組織の周囲を取り囲むNb-A1金属間化合物からなるマトリクスとを有する点に特徴を有している。このような結晶組織を有する構成とすることで、極めて微細な粉末にまで容易に破碎することが可能であり、従来の電解コンデンサ用に用いられてきたタンタルの1次粉に比して大幅な粒径の微細化を実現し、これにより焼結体とした場合の表面積を向上させることができる。従って、本発明に係るNb-A1合金粉末を電解コンデンサに適用するならば、表面積が大きく、かつ表面に誘電体層を形成した際に高い誘電率を有する酸化物を形成することができるため、本発明のNb-A1合金粉末を電解コンデンサに適用するならば、小型で大容量の電解コンデンサを実現することができる。

## 【0020】

次に、本発明に係る電解コンデンサ用Nb-A1合金粉末の製造方法の一例について以下に説明する。

#### 【0021】

(1) 本発明に係るNb-A1合金粉末を作製するには、まず、所定の組成を有するNb-A1の溶融金属を用意する。本製造方法において前記組成は、アルミニウム含有量が46質量%未満であれば、任意の組成を選択することができる。

#### 【0022】

(2) 次に、上記溶融金属が用意できたならば、ガスアトマイズ法やRSR法(回転電極法)等により前記溶融金属を急凝固して粉体とするか又はいわゆるメルトスピン法によって薄帯とする。そして、前記粉体又は薄帯を、例えばボールミルやジェットミルを用いて粉砕し、本発明に係る電解コンデンサ用Nb-A1合金粉末を得る。さらに、前記急冷工程において得られた粉体や薄帯を水素化工程に供して水素化し、しかる後に粉砕工程に供するならば、さらに微細な合金粉末が得られる。

#### 【0023】

本発明に係る製造方法では、上記いずれの方法を用いる場合にも、冷却速度が $10^3\text{℃/秒}$ 以上(より好ましくは $10^4\text{℃/秒}$ 以上)となるように製造条件を設定することが好ましい。

#### 【0024】

以上の工程により、金属間化合物を主体とした微細デンドライト組織と、このデンドライト組織を取り囲む金属化合物のマトリクスを有する本発明の電解コンデンサ用Nb-A1合金粉末を製造することができる。

#### 【0025】

##### 【実施例】

以下に本発明の実施例を説明する。

#### 【0026】

表1に示す【実施例1】はAl濃度が質量%で27%以上46%未満の例である。この範囲の組成の急冷アトマイズ粉は初晶であるNbAl<sub>3</sub>のデンドライト



相と  $\text{NbAl}_3$  と  $\text{Nb}_2\text{Al}$  との共晶状の組織からなる混合組織であり、フッ酸と硝酸の混合酸液によってエッチングすると  $\text{NbAl}_3$  相がエッチングされ表面積の著しい拡大がもたらされる。この粉末を焼結し化成処理を施すとタンタ粉末を凌ぐ大きな CV 値とタンタル粉末よりも高い耐圧の素子となる。

【0027】

【表1】

試料 番号	組成	粉体の作成 プロセス	粒径： $d_{50}\mu\text{m}$	焼結素子 嵩比重 $\text{gr}/\text{cm}^3$	化成 電圧 $V_f$	CV 値 $\mu\text{FV}/\text{g}$	漏洩 電流 $\mu\text{A}$
1	Nb-35%Al	ガスアトマイズ後 エッチング	35	3.5	120	16,000	<0.5
2	Nb-10%Ta-35%Al	RSR 法	1.5	3.8	120	33,000	<0.5
3	Nb-3%Zr-35%Al	REP 法後に 粉碎しエッチ ング	1.5	3.2	120	28,000	<0.5
4	Nb-35%Al	ガスアトマイズ後 エッチング	55	3.4	240	13,000	<0.5
5	Nb-10%Ta-35%Al	ガスアトマイズ後 エッチング	50	3.9	240	12,000	<0.5
6	Nb-3%Zr-35%Al	REP 法後に 粉碎しエッチ ング	1.2	3.6	240	25,000	<0.5
7	Nb-10%Ta-30%Al	REP 法後	1.3	3.2	240	32,000	<0.5
8	Nb-10%Ta- 30%Al-5%Ba	REP 法後に 粉碎しエッチ ング	1.3	3.9	480	20,000	<0.1
9	Nb-10%Ta-30%Al -3%Sr	REP 法後に 粉碎しエッチ ング	1.2	3.9	400	16,000	<0.1

【0028】

表2に示す【実施例2】は Al 濃度が質量%で 14%以上 27%未満の例である。この範囲の組成の急冷アトマイズ粉は初晶である  $\text{Nb}_2\text{Al}$  のデンドライト相と  $\text{NbAl}_3$  と  $\text{Nb}_2\text{Al}$  との共晶状の組織からなる混合組織であり、フッ酸と硝酸の混合酸液によってエッチングすると  $\text{NbAl}_3$  相がエッチングされ表面積

の著しい拡大がもたらされる。この粉末を焼結し化成処理を施すとタンタル粉末を凌ぐ大きなCV値とタンタル粉末よりも高い耐圧の素子となる。

【0029】

【表2】

試料 番号	組成	粉体の作成方法	粒径： $d_{50}\mu\text{m}$	焼結素子高 比重 $\text{gr/cm}^3$	化成電 圧 $V_f$	CV 値 $\mu\text{FV/g}$	漏洩 電流 $\mu\text{A}$
1	Nb-20%Al	REP 法後に粉 砕しイッチング	1.2	3.6	120	35,000	<0.5
2	Nb-20%Al	ガスアトマイズ後粉 砕しイッチング	1.7	3.8	120	47,000	<0.5
3	Nb-20%Al	RSR 法後粉砕 しイッチング	1.5	3.7	120	38,000	<0.5
4	Nb-20%Al	ガスアトマイズ後粉 砕しイッチング	5.5	3.1	120	22,000	<0.5
5	Nb-20%Al -5%Ba	REP 法後に粉 砕しイッチング	1.2	3.6	240	40,000	<0.5

【0030】

表3に示す[実施例3]はAl濃度が質量%で10%以上14%未満の例である。この範囲の組成の急冷アトマイズ粉は初晶である $\text{Nb}_3\text{Al}$ のデンドライト相と $\text{Nb}_3\text{Al}$ と $\text{Nb}_2\text{Al}$ との共晶状の組織からなる混合組織であり、水素吸蔵処理をして粉砕すると微細な粉体とすることができ表面積の著しく大きな焼結素子を得ることができる。この焼結素子は化成処理を施すとタンタル粉末を凌ぐ大きなCV値とタンタル粉末よりも高い耐圧の素子となる。

【0031】

【表 3】

試料 番号	組成	粉体の作成プロセス	粒径: $d_{50} \mu\text{m}$	焼結素子嵩 比重 $\text{gr/cm}^3$	化成電 圧 $V_f$	CV 値 $\mu\text{FV/g}$	漏洩 電流 $\mu\text{A}$
1	Nb-12%Al	RSR 法後に粉 砕しイッチング	1.3	3.6	24	145,000	<0.5
2	Nb-12%Al	ガスアトマイズ後粉 砕しイッチング	1.6	3.8	80	51,000	<0.5
3	Nb-12%Al	RSR 法後粉砕 しイッチング	1.6	3.7	120	29,000	<0.5
4	Nb-5%Ta- 12%Al	ガスアトマイズ後粉 砕しイッチング	5.2	3.1	120	35,000	<0.5
5	Nb-12%Al -5%Ba	RSR 法後に粉 砕しイッチング	1.1	3.6	240	24,000	<0.5

## 【0032】

表 4 に示す [実施例 4] は Al 濃度が質量%で 10%未満の例である。この範囲の組成の急冷アトマイズ粉は初晶である Nb のデンドライト相と  $\text{Nb}_3\text{Al}$  と Nb との共晶状の組織からなる混合組織であり、水素吸蔵処理をして粉砕すると微細な粉体とすることができ表面積の著しく大きな焼結素子を得ることができる。この焼結素子は化成処理を施すとタンタル粉末を凌ぐ大きな CV 値とタンタル粉末よりも高い耐圧の素子となる。

## 【0033】

【表 4】

試料 番号	組成	粉体の作成プロセス	粒径: $d_{50}/\mu\text{m}$	焼結素子嵩 比重 $\text{gr}/\text{cm}^3$	化成電 圧 $V_f$	CV 値 $\mu\text{FV}/\text{g}$	漏洩 電流 $\mu\text{A}$
1	Nb-7%Al	RSR 法後に粉 砕しエッチング	1.1	3.6	80	75,000	<0.5
2	Nb-7%Al	ガスアトマイズ後粉 砕しエッチング	1.4	3.8	80	65,000	<0.5
3	Nb-7%Al	RSR 法後粉砕 しエッチング	1.5	3.7	120	30,000	<0.5
4	Nb-5%Ta- 7%Al	ガスアトマイズ後粉 砕しエッチング	2.2	4.1	120	32,000	<0.5
5	Nb-7%Al -5%Ba	RSR 法後に粉 砕しエッチング	1.1	3.6	240	25,000	<0.5

【0034】

## 【発明の効果】

以上詳細に説明したように、本発明の電解コンデンサ用 Nb-Al 合金粉末は、表面に誘電体層を形成することで電解コンデンサの陽極体として用いられる Nb-Al 合金粉末であって、 $\text{NbAl}_3$ 、 $\text{Nb}_2\text{Al}$ 、 $\text{Nb}_3\text{Al}$ 、又は Nb を主体とする微細デンドライト組織と、該デンドライト組織を取り囲む、 $\text{NbAl}_3$ 、 $\text{Nb}_2\text{Al}$ 、 $\text{Nb}_3\text{Al}$ 、又は Nb から選ばれる 2 種よりなる共晶状組織からなるマトリクスとを有する構成とされたことで、極めて微細な粉末とすることができる。従って、係る粉末によれば、従来のタンタル焼結体よりも高い耐圧を有し、大容量の電解コンデンサを構成し得る焼結体を極めて容易に作成することが可能である。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 コンデンサ容量が大きく、耐圧の高い電解コンデンサを構成することができる電解コンデンサ用 Nb-Al 合金粉末を提供する。

【解決手段】 表面に誘電体層を形成することで電解コンデンサの陽極体として用いられる Nb-Al 合金粉末であって、NbAl<sub>3</sub>、Nb<sub>2</sub>Al、Nb<sub>3</sub>Al、又はNbを主体とする微細デンドライト組織と、該デンドライト組織を取り囲む、NbAl<sub>3</sub>、Nb<sub>2</sub>Al、Nb<sub>3</sub>Al、又はNbから選ばれる2種よりなる共晶状組織からなるマトリクスとを有する構成とした。

【選択図】 なし

特願 2 0 0 2 - 3 3 3 9 8 9

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 5 0 2 1 6 9 0 5 4 ]

1. 変 更 年 月 日

2 0 0 2 年    5 月 1 3 日

[ 変 更 理 由 ]

新 規 登 録

住    所

東京都港区赤坂 4 丁目 1 番地 4 号    赤坂中西ビル別館 1 階

氏    名

シービーエムエムアジア株式会社